

FIBER-REINFORCED THERMOPLASTIC RESIN COMPOSITION WITH EXCELLENT SURFACE FLATNESS

Patent number: JP2067326
Publication date: 1990-03-07
Inventor: KATAYOSE TERUO; MURAKAMI NAOYUKI
Applicant: ASAHI CHEMICAL IND
Classification:
- international: *C08J5/04; C08K7/02; C08L101/00; C08J5/04; C08K7/00; C08L101/00; (IPC1-7): C08J5/04; C08K7/02; C08L101/00*
- european:
Application number: JP19880218495 19880902
Priority number(s): JP19880218495 19880902

[Report a data error here](#)

Abstract of JP2067326

PURPOSE:To obtain the title compsn. useful for the products to be used for an automotive outer panel, outer members of industrial and domestic machinery, etc., by incorporating a filler in a compsn. comprising a thermoplastic resin and reinforcing fiber under a specified condition. **CONSTITUTION:**1-50wt.% filler (e.g. kaoline clay, carbonaceous whisker, etc.,) is compounded with 99-50wt.% compsn. comprising 40-80wt.% thermoplastic resin (e.g. PP) and 60-20wt.% reinforcing fiber with a fiber diameter of 3-20 μ m and a fiber length of 1-50mm (e.g. glass fiber) at such a ratio that when the aspect ratio of the filler is smaller than 3, the diameter of the inscribed sphere is selected to be at most one fourth of said reinforcing fiber and when said aspect ratio is 3 or larger, the fiber diameter is selected to be at most one fourth of said reinforcing fiber and the linear expansion coefficient of the binary compsn. comprising said filler and said thermoplastic resin is to be at most 90% of that of said thermoplastic resin.

Data supplied from the *esp@cenet* database - Worldwide

⑫ 公開特許公報(A)

平2-67326

⑤ Int. Cl.³

識別記号

庁内整理番号

④ 公開 平成2年(1990)3月7日

C 08 J 5/04
C 08 K 7/02
C 08 L 101/00

K C J
L S Y

6845-4 F
6770-4 J
8215-4 J

審査請求 未請求 請求項の数 1 (全5頁)

⑥ 発明の名称 表面平滑性に優れた繊維補強熱可塑性樹脂組成物

⑦ 特 願 昭63-218495

⑧ 出 願 昭63(1988)9月2日

⑫ 発 明 者 片 寄 照 雄 神奈川県川崎市川崎区夜光1丁目3番1号 旭化成工業株式会社内

⑫ 発 明 者 村 上 直 行 神奈川県川崎市川崎区夜光1丁目3番1号 旭化成工業株式会社内

⑪ 出 願 人 旭化成工業株式会社 大阪府大阪市北区堂島浜1丁目2番6号

⑭ 代 理 人 弁理士 渡辺 一雄

明 細 書

1. 発明の名称

表面平滑性に優れた繊維補強熱可塑性樹脂組成物

2. 特許請求の範囲

(A) 熱可塑性樹脂40～80重量%および繊維径3～20 μ m、繊維長1～50mmの補強繊維60～20重量%からなる組成物、99～50重量%と(B) 充填剤、1～50重量%とからなり、(C) 前記充填剤のアスペクト比が3未満のときは、その内挿球の直径が、また、同アスペクト比が3以上のときはその繊維径が前記補強繊維径の $\frac{1}{3}$ 以下であり、かつ、(D) 前記充填剤と前記熱可塑性樹脂との2成分の組成物の線膨張率が前記熱可塑性樹脂の線膨張率の90%以下となるような組成比で前記充填剤を含有することを特徴とする表面平滑性に優れた繊維補強熱可塑性樹脂組成物

3. 発明の詳細な説明

(産業上の利用分野)

本発明は、繊維補強熱可塑性樹脂組成物に関するものであり、更に詳しくは、機械的物性とシー

トの表面平滑性に優れた繊維補強熱可塑性樹脂組成物に関するものである。

(従来技術)

熱可塑性樹脂と補強繊維とからなる繊維補強熱可塑性樹脂組成物としては、チョップドガラス繊維をマトリックス樹脂に分散させたFRTP、あるいはガラスの長繊維からなるスワールマットを補強層とする繊維補強熱可塑性樹脂シートが良く知られている。

(発明が解決しようとする課題)

しかしながら、これらの繊維補強熱可塑性樹脂組成物およびシートはガラス繊維を用いていることから、成形品の表面平滑性は悪い。特に、スワールマットを補強繊維とするときは、成形時に熔融樹脂中表面から繊維が突き出るため表面平滑性は極めて悪い。このスワールマットを使用する欠点を克服するものとして、特開昭60-158228号公報に開示されている「高い弾性率を有し、かつ大部分が7mmから50mmの長さとし、13 μ m以下の直径を有する20重量%から60重量%の補強繊維

と40重量%から80重量%の熱可塑性物質とからなる繊維補強シート」があるが、表面平滑性は今一つ不足で満足できるものではない。

(課題を解決するための手段)

本発明者等は、このような事情に鑑み、鋭意検討した結果、マトリックス樹脂に特定の充填剤を添加することによって成形品表面の平滑性に優れた繊維補強熱可塑性樹脂組成物を提供できることを見出して本発明を完成した。

すなわち、本発明は、

(A) 熱可塑性樹脂40～80重量%および繊維径3～20 μm 、繊維長1～50mmの補強繊維60～20重量%からなる組成物、99～50重量%と
(B) 充填剤、1～50重量%とからなり、(C) 前記充填剤のアスペクト比が3未満のときは、その内挿球の直径が、また、同アスペクト比が3以上のときはその繊維径が前記補強繊維径の $\frac{1}{2}$ 以下であり、かつ、(D) 前記充填剤と前記熱可塑性樹脂との2成分の組成物の線膨張率が前記熱可塑性樹脂の線膨張率の90%以下となるような組成比で

ドポリマー類が挙げられる。

本発明に用いる補強繊維は、本発明に用いる熱可塑性樹脂の引張り弾性率よりも高い弾性率をもつものであれば何でも良く、例えば、ガラス繊維、カーボン繊維、セラミックス繊維、鉱物繊維等の無機繊維、ステンレス、黄銅等の金属繊維、超高分子量ポリエチレン繊維、ポリオキシメチレン繊維、ポリビニルアルコール繊維、液晶性芳香族ポリエステル繊維、ポリエチレンテレフタレート繊維、ポリ-p-フェニレンテレフタレート繊維、ポリ-m-フェニレンイソフタルアミド繊維等のアラミド繊維、ポリフェニレンベンゾチアゾール繊維、ポリアクリロニトリル繊維、セルローズ繊維等の有機繊維等が挙げられる。

補強繊維の径は3～50 μm であり、3 μm 未満では分散が困難であり好ましくない。また20 μm を越えるときは分散時に折れやすく好ましくない。補強繊維の長さは1～50、好ましくは1～25mmである。大部分の補強繊維が1mm未満のときは組成物の補強効果は認められない。また、

前記充填剤を含有することを特徴とする表面平滑性に優れた繊維補強熱可塑性樹脂組成物を提供する。

本発明に用いる熱可塑性樹脂は、ポリエチレン、ポリプロピレン等のポリオレフィン樹脂、ポリスチレン、ゴム補強ポリスチレン、アクリロニトリルスチレン共重合体、ABS樹脂等のスチレン系樹脂、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート等のポリエステル樹脂、ナイロン6、ナイロン66、ナイロン46等のポアミド樹脂、ポリフェニレンエーテル、変性ポリフェニレンエーテル等のポリエーテル系樹脂、ポリオキシメチレン系樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリアリレート、ポリフェニレンサルファイド、ポリスルホン、ポリエーテルスルホン、ポリエーテルエーテルケトン、ポリエーテルイミド等の超耐熱樹またはポリカーボネート/ABS、ポリフェニレンエーテル/ポリアミド、ポリカーボネート/ポリブチレンテレフタレート、ポリフェニレンエーテル/ポリブチレンテレフタレート等のブレン

50mmを越える長さでは均一分散が困難である。

補強繊維の量は20～60、好ましくは30～50重量%である。20重量%未満では補強効果はあまり認められず、そして60重量%を越えると組成物は脆くなるので好ましくない。

本発明に用いる充填剤は、その形状がどのようなものであつても良い。即ち球状または球に近い形状をしているときは(アスペクト比が3未満のとき)内挿球の直径が補強繊維径の約 $\frac{1}{2}$ 以下である。また形状が繊維状(アスペクト比が3以上)であれば、その繊維径が補強繊維径の約 $\frac{1}{2}$ 以下であればよい。上記の径が分布した形状の充填剤においては、60重量%以上好ましくは70重量%以上が補強繊維径の $\frac{1}{2}$ 以下であればよい。

アスペクト比とは、球状または球状に近い形状のときは短径に対する長径の比であり、繊維状のときは、繊維径に対する繊維長の比で定義されるものである。

さらに該充填剤と熱可塑性樹脂との組成物の線膨張率が熱可塑性樹脂の線膨張率の90%以下と

なる場合に表面平滑性に優れた組成物となる。線膨張率は30℃から熱可塑性樹脂の融点またはガラス転移温度よりも30℃低い温度までの範囲で測定した値である。昇温速度は10℃/minである。

充填剤の例として、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、酸化亜鉛、酸化マグネシウム、ケイ酸アルミニウム、タルク、ウオラストナイト、ケイ酸、ケイ酸カルシウム、ケイ酸アルミニウム、マイカ、ガラスバルン、石英バルン、黒鉛、ホウ素、アルミナ、炭化ケイ素、炭化ホウ素、ポリア、窒化ホウ素、シリカ、ベリリウム、石英、窒化ケイ素、酸化ベリリウム、窒化アルミニウム等の無機粉末、アスベスト、チタン酸カリ、炭素、黒鉛、ホウ素、アルミナ、炭化ケイ素、炭化ホウ素、ポリア、窒化ホウ素、シリカ、ベリリウム、石英、窒化ケイ素等の無機ウイスキー、マイクロセルローズ、熱硬化性樹脂の粉末、アラミドバルブ、繊維補強熱可塑性樹脂組成物のマトリックス樹脂の融点より

も高い融点を有する熱可塑性樹脂の極細繊維、例えば極細ポリエチレンテレフタレート繊維等、または粉末等が挙げられる。これらの充填剤を2種以上混合して用いることもできる。

充填剤の添加量は、繊維補強熱可塑性樹脂シートの機械的物性等の特徴を阻害しない限りで、充填剤とマトリックスとなる前記熱可塑性樹脂との組成物の線膨張率が熱可塑性樹脂の膨張率の90%以下となる配合量であれば良いので、マトリックスと補強繊維との組合せで好ましい配合量は変わるが、一般的には繊維補強熱可塑性樹脂組成物を構成する熱可塑性樹脂と補強繊維との合計重量が99～50重量%、充填剤が1重量%～50重量%、好ましくは5重量%～30重量%の範囲である。

本発明の繊維補強熱可塑性樹脂組成物の製造には、種々の公知の技術を用いることができる。

たとえば、熱可塑性樹脂、補強繊維、充填剤をドライブレンドして押出機、ロール、パンバリーミキサー等で混練する方法がある。また、特開昭

57-28135号公報、特開昭58-59224号公報等に記載されているように、粉末状熱可塑性樹脂、補強繊維および充填剤とから、抄紙法によつて、繊維補強熱可塑性樹脂組成物を製造し、インラインまたはオンラインでベルトプレス等のホットプレスを用いて、該樹脂を溶融すると共に補強繊維および充填剤とを一体化させる方法がある。

本発明の組成物に、難燃剤、熱安定剤、紫外線防止剤、着色剤等の各種安定剤を組成物の機械的物性を損わない範囲で添加してもよい。

(実施例)

次に本発明を実施例によつて更に詳細に説明するが、これに限定されるものではない。なお実施例中、部は重量部を示す。

実施例1

ポリプロピレン（溶融流れ指数MI=4）粉末45部、直径10 μ m、長さ6mmのガラス繊維30部および直径が0.2～0.5 μ mのチタン酸カリウイスキー25部を抄紙法によりシート状組成物を得た。これを200℃、100kg/cm²の圧力下で圧縮

成形法により溶融固化して物性を測定した。

特性を表に示す。なお、ポリプロピレン樹脂とチタン酸カリウムウイスキーとの組成物を抄紙法で製造し線膨張率を測定した結果40 $\times 10^{-6}$ cm/cm \cdot ℃であり、ポリプロピレンの線膨張率は230 $\times 10^{-6}$ cm/cm \cdot ℃の17%であつた。表面平滑性は像鮮明度により評価した。値が大きいほど表面平滑性が優れている。

比較例1

実施例1と同様の方法でポリプロピレン粉末60部、ガラス繊維（直径10 μ m、長さ6mm）40部からなる溶融固化シートを作製した。特性を表に示す。

実施例2

ポリエチレンテレフタレート粉末49部、直径10 μ m、長さ13mmのガラス繊維21部、直径が0.05～0.5 μ mの炭素質ウイスキー30部を抄紙法によりマツトを作製し、次いで300℃、100kg/cm²の圧力下で圧縮成形法により溶融固化シートとした。特性を表に示す。ポリエチレンテレフ

タレートと炭素質ウイスキーとの組成物の線膨張率は $45 \times 10^{-6} \text{cm/cm} \cdot ^\circ\text{C}$ であり、ポリエチレンテレフタレート樹脂の線膨張率 $200 \times 10^{-6} \text{cm/cm} \cdot ^\circ\text{C}$ の23%であつた。

比較例 2

炭素質ウイスキーを含まない実施例 2 の組成で溶融固化シートを作製した。特性を表に示す。

実施例 3

ポリプロピレン (MI = 4) 粉末 54 部、直径 $10 \mu\text{m}$ 、長さ 13mm のガラス繊維 36 部および平均粒子径が $1 \mu\text{m}$ である水酸化アルミニウム粉末 10 部を実施例 1 と同様の方法で溶融固化シートを作製した。特性を表に示す。ポリプロピレンと水酸化アルミニウムとの組成物の線膨張率は、 $160 \times 10^{-6} \text{cm/cm} \cdot ^\circ\text{C}$ であり、ポリプロピレン樹脂の線膨張率 $230 \times 10^{-6} \text{cm/cm} \cdot ^\circ\text{C}$ の70%であつた。

比較例 3

水酸化アルミニウム粉末として平均粒子径が $3.5 \mu\text{m}$ の粉末を用いた以外は実施例 3 と同一の組成で溶融固化シートを作製した。特性を表に示す。

す。

実施例 4

ポリプロピレン (MI = 4) 粉末 45 部、直径 $6 \mu\text{m}$ 、長さ 13mm のガラス繊維 50 部および平均粒子径が $0.4 \mu\text{m}$ であるハードクレ型カオリンクレ 5 部を実施例 1 と同様の方法で溶融固化シートを作製した。特性を表に示す。ポリプロピレンとハードクレ型カオリンクレとの組成物の線膨張率は $195 \times 10^{-6} \text{cm/cm} \cdot ^\circ\text{C}$ であり、ポリプロピレン樹脂の線膨張率 $230 \times 10^{-6} \text{cm/cm} \cdot ^\circ\text{C}$ の85%であつた。

比較例 4

ハードクレ型カオリンクレを含まない実施例 2 の組成で溶融固化シートを作製した。特性を表に示す。

以下余白

表

	組 成			特 性			
	熱可塑性樹脂	補 強 繊 維	充 填 剤	引張り破断強さ (kg/cm^2)	曲げ弾性率 (kg/cm^2)	Izod衝撃強さ (ノッチ付) ($\text{kg} \cdot \text{cm/cm}$)	像鮮明度* (%)
実施例 1	ポリプロピレン 45部	ガラス繊維30部 (直径 $10 \mu\text{m}$, 長さ 6mm)	チタン酸カリウイスキー25部 (直径 $0.2 \sim 0.5 \mu\text{m}$)	550	66000	50	20
比較例 1	ポリプロピレン 60部	ガラス繊維40部 (直径 $10 \mu\text{m}$, 長さ 6mm)	—	600	55000	60	7
実施例 2	ポリエチレンテレフタレート 49部	ガラス繊維21部 (直径 $10 \mu\text{m}$, 長さ 13mm)	炭素質ウイスキー30部 (直径 $0.05 \sim 0.5 \mu\text{m}$)	1600	130000	55	18
比較例 2	ポリエチレンテレフタレート 70部	ガラス繊維30部 (直径 $10 \mu\text{m}$, 長さ 13mm)	—	1400	90000	70	10
実施例 3	ポリプロピレン 54部	ガラス繊維36部 (直径 $10 \mu\text{m}$, 長さ 13mm)	水酸化アルミニウム10部 (平均径 $1 \mu\text{m}$)	570	50000	47	17
比較例 3	ポリプロピレン 54部	ガラス繊維36部 (直径 $10 \mu\text{m}$, 長さ 13mm)	水酸化アルミニウム10部 (平均径 $3.5 \mu\text{m}$)	540	48000	45	11
実施例 4	ポリプロピレン 45部	ガラス繊維50部 (直径 $6 \mu\text{m}$, 長さ 13mm)	ハードクレ型カオリンクレ 5 部 (平均径 $0.4 \mu\text{m}$)	1100	75000	72	15
比較例 4	ポリプロピレン 47部	ガラス繊維53部 (直径 $6 \mu\text{m}$, 長さ 13mm)	—	1100	74000	74	8

* 像鮮明度の測定は、反射法によるものであり、その反射角度は 45°C 、光学槽の幅は 0.5mm である。(JIS K7105 に準拠して測定した)。

〔発明の効果〕

本発明によれば、特定の大きさの充填剤で、かつ充填剤と熱可塑性樹脂との組成物の線膨張率が熱可塑性樹脂の線膨張率の90%以下となるように充填剤を添加することによつて、極めて容易に表面平滑性に優れた組成物を得ることができる。従つて表面平滑性が望まれている分野の製品、例えば自動車用外板、産業用および民生用機器類で外に出る部分等の製品として有用である。また、表面平滑性を向上させるための種々の後加工、例えばコーティング、フィルムの積層、成形金型温度の高温化等が不要となりコストが安くなる効果もある。

特許出願人 旭化成工業株式会社